#### 明細書

## 有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置及び表示装置

## 5 技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、表示装置に関し、詳しくは長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、及び表示装置に関する。

## 10 背景技術

15

20

従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ(ELD)がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子(以後、有機EL素子ともいう)が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

一方、有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・りん光)を利用して発光する素子であり、数V~数十V程度の電圧で発光が可能であり、更に自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために、省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

今後の実用化に向けた有機EL素子の開発としては、更に低消費電力で効率よく

15

高輝度に発光する有機EL素子が望まれているわけであり、例えば、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体又はトリススチリルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドープし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術(例えば、特許文献1参照。)が、また8ーヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドープした有機発光層を有する素子(例えば、特許文献2参照。)が、更に、8ーヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドープした有機発光層を有する素子(例えば、特許文献3参照。)が報告されている。

上記文献に開示されている技術では、励起一重項からの発光を用いる場合、一重 項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が2 5%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率 (η e x t) の限界は5%とされている。

ところが、プリンストン大より励起三重項からのりん光発光を用いる有機EL素子の報告(例えば、非特許文献1参照。)がされて以来、室温でりん光を示す材料の研究(例えば、非特許文献2、特許文献4参照。)が活発になってきている。

励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ、照明用にも応用可能であり注目されている。

The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electrolumines cence (EL '00、浜松)では、燐光性化合物についていくつかの報告がなされている。例えば、Ikai等はホール輸送性の化合物を燐光性化合物のホストとして用いている。また、M. E. Tompson等は、各種電子輸送性材料

を燐光性化合物のホストに新規なイリジウム錯体をドープして用いている。さらに、Tsutsui等は、正孔阻止層(エキシトン阻止層)の導入により高い発光輝度を得ている。正孔阻止層としては、その他、パイオニア社により、ある種のアルミニウム錯体を使用する例、及びAppl. Phys. Lett., 79巻、156ページ(2001年)において、Ikai等は、ホールブロック層(エキシトンブロック層)としてフッ素置換化合物を用いることにより、高効率な発光を達成している。

## 【特許文献1】

特許第3093796号明細書

10 【特許文献 2】

特開昭63-264692号公報

【特許文献3】

特開平3-255190号公報

【特許文献4】

15 特開2000-21572号公報

【非特許文献1】

M. A. Baldo et al., nature、395巻、 151~154ページ (1998年)

【非特許文献2】

M. A. Baldo et al., nature、403巻、 17号、750-753ページ (2000年)

しかしながら、一般的に、蛍光発光素子に比してリン光素子は寿命が短く、リン 光性化合物を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は連続駆 動時の耐久性に乏しい。

これは、発光材料にリン光性化合物を用いた有機EL素子の高発光輝度、高発光 効率を達成するために設けられた阻止層の劣化から生じている。

即ち、例えば、発光層からの電子や正孔を阻止層で十分にブロックすることができず若干阻止層内に電子や正孔が注入されてしまい、これにより、阻止層が劣化して素子の寿命が短くなる。また、リン光発光ドーパントは励起寿命が長いため、励起子の濃度が高くなると、生成した三重項励起子が近くの三重項励起子と衝突し、T-T消滅を起こし、発光効率低下につながる。

本発明は係る課題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、長寿命、高発 10 光効率である有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置および表示装置を提供 することである。

## 発明の開示

本発明の上記目的は下記構成により達成された。

- 15 (1) 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記正孔阻止層1がリン光性化合物を含有し、該リン光性化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 20 (2) 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接して正孔阻止層2を有することを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (3) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有さ

10

れるリン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする前記1又は2に記載の 有機エレクトロルミネッセンス素子。

- (4) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする前記1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (5) 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陽極との間にあり、前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記電子阻止層1がリン光性化合物を含有し、該リン光性化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (6) 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接して電子阻止層2を有することを特徴とする前記5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (7) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有さ 15 れるリン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする前記5又は6に記載の 有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (8) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする前記5又は6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 20 (9) 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記発光層と前記陽極との間にあり、前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記正孔阻止層1がリン光性化合

物を含有し、該リン光性化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の 0.1~50%であり、前記電子阻止層1がリン光性化合物を含有し、該リン光性 化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%であるこ とを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

- 5 (10) 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接 して正孔阻止層2を有することを特徴とする前記9に記載の有機エレクトロルミ ネッセンス素子。
- (11) 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接して電子阻止層2を有することを特徴とする前記9又は10に記載の有機エレク10 トロルミネッセンス素子。
  - (12) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有されるリン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする前記9~11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (13) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有 15 されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする前記9~11の いずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (14) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有されるリン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする前記9~12のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 20 (15) 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする前記9~11、 13のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (16) 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有

する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記正孔阻止層1が前記発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するように、前記正孔阻止層1にリン光性化合物を含有させたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

- (17) 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接して正孔阻止層2を有することを特徴とする前記16に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (18) 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有 する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陽極との間に あり、前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記電子阻止層1が前記発光層 のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するように、前記電子阻止層1に リン光性化合物を含有させたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素 子。
- 15 (19) 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接 して電子阻止層2を有することを特徴とする前記18に記載の有機エレクトロル ミネッセンス素子。
- (20) 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間に あり、前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記発光層と前記陽極との間に あり、前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記正孔阻止層1が前記発光層 のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するように、前記正孔阻止層1に リン光性化合物を含有させ、前記電子阻止層1が前記発光層のリン光発光の0.1

- ~50%のリン光発光を有するように、前記電子阻止層1にリン光性化合物を含有させたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (21) 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接して正孔阻止層2を有することを特徴とする前記20に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (22) 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接 して電子阻止層2を有することを特徴とする前記20又は21に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (23) 白色に発光することを特徴とする前記1~22のいずれか1項に記載 10 の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (24) 前記1~23のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
  - (25) 前記1~23のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス 素子を備えたことを特徴とする照明装置。
- 15 (26) 前記25に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子と、を備えたことを特徴とする表示装置。

#### 図面の簡単な説明

- 第1図は有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。
- 20 第2図は表示部の模式図である。
  - 第3図は画素の模式図である。
  - 第4図はパッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。
  - 第5図は照明装置の概略図である。

第6図は照明装置の断面図である。

# 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を詳細に説明する。

5 本発明者等は、鋭意検討の結果、陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する 発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と 陰極との間に存在し発光層に隣接して正孔阻止層1を設け、この正孔阻止層1にリ ン光性化合物を含有させ、このとき正孔阻止層1のリン光性化合物の含有率が発光 層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%となるようにすることにより、長寿 10 命、高発光効率である有機EL素子とすることができることを見い出した。

即ち、本発明者等らは、正孔阻止層1に含有されるリン光性化合物の含有率を、発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%とすることにより、正孔阻止層1に注入されてしまった正孔を安定化させ、正孔阻止層1の劣化を抑えて、素子を長寿命化させることができることを見出した。また、再結合領域を広げることで、三重項励起子の濃度を下げ、T-T消滅の発生を抑え、素子発光効率を向上させることができることを見出した。

また、本発明者等は、陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陽極との間に存在し発光層に隣接して電子阻止層1を設け、この電子阻止層1にリン光性化合物を含有させ、このとき電子阻止層1のリン光性化合物の含有率が発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%となるようにすることにより、長寿命、高発光効率である有機EL素子とすることができることを見い出した。

即ち、本発明者等らは、電子阻止層1に含有されるリン光性化合物の含有率を、

15

20

発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%とすることにより、電子阻止層1に注入されてしまった電子を安定化させ、電子阻止層1の劣化を抑えて、素子を長寿命化させることができることを見出した。また、再結合領域を広げることで、三重項励起子の濃度を下げ、T-T消滅の発生を抑え、素子発光効率を向上させることができることを見出した。

さらに、本発明者等は、陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陰極との間に存在し発光層に隣接して正孔阻止層1を設け、この正孔阻止層1にリン光性化合物を含有させ、このとき正孔阻止層1のリン光性化合物の含有率が発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%となるようにし、さらに、発光層と陽極との間に存在し発光層に隣接して電子阻止層1を設け、この電子阻止層1にリン光性化合物を含有させ、このとき電子阻止層1のリン光性化合物の含有率が発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%となるようにすることにより、より一層長寿命であり、高発光効率である有機EL素子とすることができることを見い出した。

正孔阻止層1には、発光層に含有されるリン光性化合物の含有率の1~20%の 含有率となるようにリン光性化合物を含有させることがより好ましく、これにより、 より一層長寿命であり、高発光効率な有機EL素子とすることができる。

電子阻止層1には、発光層に含有されるリン光性化合物の含有率の1~20%の含有率となるようにリン光性化合物を含有させることがより好ましく、これにより、より一層長寿命である有機EL素子とすることができる。

本発明においては、正孔阻止層1と陰極との間にあり、正孔阻止層1に隣接して 正孔阻止層2を設けることが好ましい。これにより、より一層長寿命であり、高発 光効率な有機EL素子とすることができる。 本発明においては、電子阻止層1と陽極との間にあり、電子阻止層1に隣接して電子阻止層2を設けることが好ましい。これにより、より一層長寿命であり、高発 光効率な有機EL素子とすることができる。

本発明において正孔阻止層とは、正孔阻止材料を含有する層であり、発光層に電 5 子を輸送しつつ発光層からの正孔の流出を阻止することで発光層での電子と正孔 の再結合確率を向上させることができる。

正孔阻止材料は、発光層から移動してくる正孔を阻止する役割と、陰極の方向から注入された電子を効率よく発光層の方向に輸送することができる化合物である。

正孔阻止材料に求められる物性としては発光層のイオン化ポテンシャルIp1、

10 電子親和力E a 1、正孔阻止層のイオン化ポテンシャルI p 2、電子親和力E a 2 とした場合、

Ip2-Ip1>Ea2-Ea1

であり、かつ、正孔阻止材料の励起3重項エネルギーは発光層の励起3重項より も大きいものである。

15 正孔阻止材料としては、スチリル化合物、トリアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ボロン誘導体、カルバゾール誘導体、シロール誘導体、アルミニウム錯体などの錯体等が挙げられる。

その他の正孔阻止材料として、特開2003-31367号、同2003-31 368号、特許第2721441号等に記載の例示化合物が挙げられる。

20 さらに、正孔阻止材料として下記に示す化合物等も挙げられる。

1-18

$$H_3C$$
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

1-24
$$H_3C$$

$$C_2H_5$$

$$C_2H_5$$

$$C_2H_5$$

$$C_2H_5$$

電子阻止層は、電子阻止材料を含有する層であり、発光層に正孔を輸送しつつ発 光層からの電子の流出を阻止することで発光層での電子と正孔の再結合確率を向 上させることができる。

5 電子阻止材料は、発光層から移動してくる電子を阻止する役割と、陽極の方向から注入された正孔を効率よく発光層の方向に輸送することができる化合物である。

電子阻止材料に求められる物性としては発光層のイオン化ポテンシャル I p 1、電子親和力E a 1、電子阻止層のイオン化ポテンシャル I p 3、電子親和力E a 3 とした場合、

10 Ea1-Ea3>Ip1-Ip3

であり、かつ、電子阻止材料の励起3重項エネルギーは発光層の励起3重項より も大きいものである。

イオン化ポテンシャルとは、化合物のHOMO(最高被占分子軌道)レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、具体的には膜状態 (層状態)の化合物から電子を取り出すのに必要なエネルギーであり、これらは光電子分光法で直接測定することができる。例えば、アルバックーファイ(株)製E SCA 5600 UPS(ultraviolet photoemissio

20

n spectroscopy) にて測定することができる。

電子親和力は、真空準位にある電子が物質のLUMO(最低空分子軌道)レベルに落ちて安定化するエネルギーで定義され、

電子親和力(eV)=イオン化ポテンシャルIp(eV)+バンドギャップ(eV)で求めることができる。バンドギャップは、化合物のHOMO-LUMO間のエネルギーを表し、具体的には石英基板上に膜を作製し、吸収スペクトルを測定し、その吸収端から求めることができる。

電子阻止材料としては、トリアリールアミン誘導体、カルバゾール誘導体が挙げられる。

10 また、本発明者等は、鋭意検討の結果、陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陰極との間に存在し発光層に隣接して正孔阻止層1を設け、この正孔阻止層1に、発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するようにリン光性化合物を含有させることにより、長寿命であり、高発光効率な有機EL素子とすることができることを見い出した。

即ち、本発明者等らは、正孔阻止層1に、発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するようにリン光性化合物を含有させることにより、正孔阻止層1に注入されてしまった正孔を、正孔阻止層1に含有されるリン光性化合物の発光により安定化させ、正孔阻止層1の劣化を抑えて、有機EL素子を長寿命化させることができることを見出した。また、再結合領域を広げることで、三重項励起子の濃度を下げ、T-T消滅の発生を抑え、素子発光効率を向上させることができることを見出した。

また、本発明者等は、陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少

15

20

なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陽極との間に存在し発光層に隣接して電子阻止層1を設け、この電子阻止層1に、発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するようにリン光性化合物を含有させることにより、長寿命であり、高発光効率な有機EL素子とすることができることを見い出した。

即ち、本発明者等らは、電子阻止層1に、発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するようにリン光性化合物を含有させることにより、電子阻止層1に注入されてしまった電子を電子阻止層1に含有されるリン光性化合物の発光により安定化させ、電子阻止層1の劣化を抑えて、有機EL素子を長寿命化させることができることを見出した。また、再結合領域を広げることで、三重項励起子の濃度を下げ、T-T消滅の発生を抑え、素子発光効率を向上させることができることを見出した。

さらに、本発明者等は、陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陰極との間に存在し発光層に隣接して正孔阻止層1を設け、この正孔阻止層1に発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するようにリン光性化合物を含有させ、かつ、発光層と陽極との間に存在し発光層に隣接して電子阻止層1を設け、この電子阻止層1に発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するようにリン光性化合物を含有させることにより、より一層長寿命であり、高発光効率な有機EL素子とすることができることを見い出した。

正孔阻止層1には、発光層のリン光発光の3~50%のリン光発光を有するようにリン光性化合物を含有させることがより好ましく、これにより、より一層長寿命であり、高発光効率な有機EL素子とすることができる。

電子阻止層1には、発光層のリン光発光の3~50%のリン光発光を有するよう にリン光性化合物を含有させることがより好ましく、これにより、より一層長寿命 であり、高発光効率な有機EL素子とすることができる。

なおリン光発光は、電解発光で測定して求めることができる。

5 本発明では、発光材料としてリン光性化合物を用いている。これにより、高い発 光効率を得ることができる。

本発明に係るリン光性化合物は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。例えば、特開2001-247859 号明細書に挙げられるイリジウム錯体あるいはWO00/70,655号明細書1 6~18ページに挙げられるような式で表される、例えば、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム等やオスミウム錯体、あるいは2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチルー21H,23H-ポルフィリン白金錯体のような白金錯体もドーパントとして挙げられる。ドーパントとしてこのようなリン光性化合物を用いることにより、内部量子効率の高い発光有機EL素子を実現できる。

15 本発明で用いられるリン光性化合物としては、好ましくは元素の周期律表で8族の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物(白金錯体系化合物)、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

以下に、本発明で用いられるリン光性化合物の具体例を示すが、これらに限定さ 20 れるものではない。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、 1704~1711に記載の方法等により合成できる。

D-4

D-5

D-6

C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>

C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>

Pt-3

C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>·

Ç₂H₅

Pd-1 Pd-2 Pd-3 
$$C_2H_5$$
  $C_2H_5$   $C_2H$ 

lr-1

Ir-2

Ir-3

Ir-4 .

Ir-5

Ir-6

このほかにも、例えば、J. Am. Chem. Soc. 123巻4304~43 12頁 (2001年)、WO00/70655号、WO02/15645号、特開

10

2001-247859号、特開2001-345183号、特開2002-117978号、特開2002-170684号、特開2002-203678号、特開2002-235076号、特開2002-302671号、特開2002-324679号、特開2002-332291号、特開2002-332292号、特開2002-33858号等に記載の一般式であげられるイリジウム錯体あるいは具体的例として挙げられるイリジウム錯体、特開2002-8860号記載の式(IV)で表されるイリジウム錯体等が挙げられる。

本発明に係るリン光性化合物は、溶液中のリン光量子収率が25℃において0. 001以上である。好ましくは、0.01以上である。さらに、好ましくは、0. 1以上である。

リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398ページ(1992年版、丸善)に記載の方法で測定することが出来る。

次に、本発明の有機EL素子の構成層についてさらに詳細に説明する。

本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発 15 明はこれらに限定されない。

- (1) 陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層1/電子輸送層/陰極
- (2)陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層1/正孔阻止層2/電子輸送層/陰極
  - (3) 陽極/正孔輸送層/電子阻止層1/発光層/電子輸送層/陰極
- 20 (4)陽極/正孔輸送層/電子阻止層 2/電子阻止層 1/発光層/電子輸送層/陰極
  - (5)陽極/正孔輸送層/電子阻止層1/発光層/正孔阻止層1/電子輸送層/陰極

- (6)陽極/正孔輸送層/電子阻止層 2/電子阻止層 1/発光層/正孔阻止層 1/ 正孔阻止層 2/電子輸送層/陰極
- (7)陽極/陽極バッファー層/正孔輸送層/電子阻止層 2/電子阻止層 1/発光 層/正孔阻止層 1/正孔阻止層 2/電子輸送層/陰極バッファー層/陰極

#### 5 〈陽極〉

有機E L素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 e V以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはA u 等の金属、C u I、インジウムチンオキシド(I TO)、S n O₂、Z n O 等の導電性透明材料が挙げられる。また、10 I D I XO (I n₂O₂-Z n O) 等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10~1000nm、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

#### 〈陰極〉

20 一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4 e V以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウムーカリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀

混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム (A1₂O₃) 混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(A1₂O₃) 混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10nm~5μm、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

また、陰極に上記金属を1~20nmの膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げ た導電性透明材料をその上に作製することで、透明または半透明の陰極を作製する ことができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製 することができる。

次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層、阻止層、電子輸送層等について説明する。

20 〈バッファー層〉: 陰極バッファー層、陽極バッファー層

注入層は必要に応じて設け、陰極バッファー層(電子注入層)と陽極バッファー層(正孔注入層)があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び、 陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。 バッファー層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123~166頁)に詳細に記載されており、陽極バッファー層と陰極バッファー層とがある。

5 陽極バッファー層(正孔注入層)は、特開平9-45479号、同9-2600 62号、同8-288069号等にもその詳細が記載されており、具体例として、 銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファー層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファー層、アモルファスカーボンバッファー層、ポリアニリン (エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファー 10 層等が挙げられる。

陰極バッファー層(電子注入層)は、特開平6-325871号、同9-17574号、同10-74586号等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファー層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファー層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファー層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファー層等が挙げられる。上記バッファー層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1nm~5μmの範囲が好ましい。

〈阻止層〉:正孔阻止層、電子阻止層

正孔阻止層は、前述した、正孔阻止層 1、正孔阻止層 2 であり、発光層からの正 20 孔の流出を阻止して、高発光輝度、高発光効率の有機 E L 素子としている。

電子阻止層は、前述した、電子阻止層1、電子阻止層2であり、発光層からの電子の流出を阻止して、高発光輝度、高発光効率の有機EL素子としている。

〈発光層〉

15

本発明に係る発光層は、リン光性化合物を含有し、注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層である。発光層の発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

リン光性化合物を用いることで、発光効率の高い有機EL素子とすることができ 5 る。

リン光性化合物は、前述したリン光性化合物を用いることができる。

リン光性化合物の発光は、原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光性化合物に移動させることでリン光性化合物からの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光性化合物がキャリアトラップとなり、リン光性化合物上でキャリアの再結合が起こりリン光性化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光性化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

15 本発明においては、リン光性化合物のリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には、中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができるが、リン光性化合物のリン光発光波長が380~480nmにリン光発光の極大波長を有することが好ましい。このようなリン光発光波長を有するものとしては、青色に発光する有機EL素子や白色に発光する有機EL素子が挙げられる。

例えば、発光層、正孔阻止層 1、電子阻止層 1 に同一リン光性化合物を含有されることにより、発光スペクトルを変化させることなく、本発明の効果である長寿命化を達成させることができる。

また、発光層と同じ色度を有する異なるリン光性化合物を正孔阻止層、電子阻止層に含有させることでも、同様の効果が得られる。

更に、発光層とは若干色度の異なるリン光性化合物を正孔阻止層、電子阻止層に 含有させることにより、色度の調節に用いることもできる。

5 これは、発光層とは全く異なる色度を有するリン光性化合を正孔阻止層、電子阻止層に含有させることで、全く異なる色調にすることも可能である。

即ち、リン光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。リン光性化合物の種類、ドープ量を調整することで白色発光が可能であり、照明、バックライトへの応用もできる。

本発明においては、発光層に含有されるリン光性化合物と、正孔阻止層、電子阻止層に含有されるリン光性化合物との種類、ドープ量を変えて、白色発光させて用いてもよい。

また、発光層には、リン光性化合物の他にホスト化合物を含有してもよい。

15 本発明においてホスト化合物は、発光層に含有される化合物のうちで室温 (2 5℃) においてリン光発光のリン光量子収率が、0.01未満の化合物である。

本発明においては、ホスト化合物として前述した本発明の有機EL素子用材料を 用いることが好ましい。これにより、より一層発光効率を高くすることができる。

さらに、公知のホスト化合物を複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複 20 数種もちいることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高 効率化することができる。

これらの公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高Tg(ガラス転移温度)である化合物が好

ましい。

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が挙 げられる。

特開2001-257076、特開2002-308855、特開2001-3 13179、特開2002-319491、特開2001-357977、特開2 5 002-334786、特開2002-8860、特開2002-334787、 特開2002-15871、特開2002-334788、特開2002-430 56、特開2002-334789、特開2002-75645、特開2002-338579、特開2002-105445、特開2002-343568、特開 2002-141173、特開2002-352957、特開2002-2036 10 83、特開2002-363227、特開2002-231453、特開2003 -3165、特開2002-234888、特開2003-27048、特開20 02-255934、特開2002-260861、特開2002-280183、 特開2002-299060、特開2002-302516、特開2002-30 5083、特開2002-305084、特開2002-308837等。 15 さらに、ホスト化合物として下記化合物等も挙げられる。

$$\bigcirc -N \bigcirc N - C_2H_5$$

$$H_3C$$
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

$$C_2H_5$$
 $C_2H_5$ 
 $C_2H_5$ 
 $C_2H_5$ 

2-25

2-26

2-27

$$CF_3$$
 $CF_3$ 

### 2-45

### 2-46

$$H_3C$$
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

5

10

また、発光層は、ホスト化合物としてさらに蛍光極大波長を有するホスト化合物を含有していてもよい。この場合、他のホスト化合物とリン光性化合物から蛍光性化合物へのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光極大波長を有する他のホスト化合物からの発光も得られる。蛍光極大波長を有するホスト化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光極大波長を有するホスト化合物としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素等が挙げられる。蛍光量子収率は、前記第4版実験化学講座7の分光IIの362頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することができる。

本明細書の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」(日本色彩学会編、東京 15 大学出版会、1985)の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で 決定される。

5

発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は $5\,n\,m\sim5\,\mu\,m$ 、好ましくは $5\,n\,m\sim2\,0\,0\,n\,m$ の範囲で選ばれる。この発光層は、これらのリン光性化合物やホスト化合物が $1\,\pi$ または $2\,\pi$ 以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

#### 〈正孔輸送層〉

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で 10 正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層または複数層 設けることができる。

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えばトリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

20 正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化 合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級ア ミン化合物を用いることが好ましい。

芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N,N,

N' , N' -  $\mathcal{F}$  h  $\mathcal{F}$   $\mathcal$ ルーN, N'ービス (3-メチルフェニル) -[1, 1'-ビフェニル] -4, 4'ージアミン (TPD); 2, 2ービス (4ージーpートリルアミノフェニル) プロ パン; 1, 1-ビス (4-ジーp-トリルアミノフェニル) シクロヘキサン; N, N, N', N' ーテトラーpートリルー4, 4' ージアミノビフェニル; 1, 1ー 5 ビス (4-ジーp-トリルアミノフェニル) -4-フェニルシクロヘキサン;ビス (4-ジメチルアミノー2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス (4-ジ-p ートリルアミノフェニル)フェニルメタン;N,N' ージフェニルーN,N' ージ (4-メトキシフェニル) -4 , 4' -ジアミノビフェニル ; N , N' , N'ーテトラフェニルー4, 4' ージアミノジフェニルエーテル;4, 4' ービス (ジ 10 フェニルアミノ) クオードリフェニル; N, N, N-トリ (p-トリル) アミン; 4-(ジ-p-トリルアミノ) - 4'-(ジ-p-トリルアミノ) スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノー(2-ジフェニルビニル)ベンゼン;3-メトキシー4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカ ルバゾール、さらには、米国特許第5,061,569号明細書に記載されている 15 2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば4, 4 ービス [N-(1-t)]フチル) -N-フェニルアミノ] ビフェニル (NPD)、特開平4-308688 号に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結 された4, 4', 4'' ートリス [N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン (MTDATA) 等が挙げられる。 20

さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、p型-Si,p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は $5\,n\,m\sim5\,\mu\,m$ 程度、好ましくは $5\sim2\,0\,0\,n\,m$ である。この正孔輸送層は、上記材料の1 種または2 種以上からなる一層構造であってもよい。

〈電子輸送層〉

5

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

10 電子輸送材料としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができ、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖 20 とした高分子材料を用いることもできる。

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス (8-キノリノール) アルミニウム  $(A \ 1 \ q)$ 、トリス (5, 7-ジクロロ-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (5, 7-ジプロモ-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (2

20

ーメチルー8ーキノリノール)アルミニウム、トリス (5ーメチルー8ーキノリノール)アルミニウム、ビス (8ーキノリノール) 亜鉛 (Znq)等、及びこれらの金属錯体の中心金属が In、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型ーSi、n型ーSiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

10 電子輸送層は、上記電子輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は $5 \text{ nm} \sim 5 \mu \text{ m程度}$ 、好ましくは $5 \sim 2 0 0 \text{ nm}$ である。電子輸送層は、上記材料の1 種または2 種以上からなる一層構造であってもよい。

15 〈基体(基板、基材、支持体等ともいう)〉

本発明の有機EL素子は基体上に形成されているのが好ましい。

本発明の有機EL素子に用いることができる基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

樹脂フィルムとしては、例えばポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN)、ポリエーテルスルホン (PES)、ポリエーテルイ

ミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート(PC)、セルローストリアセテート(TAC)、セルロースアセテートプロピオネート(CAP)等からなるフィルム等が挙げられる。樹脂フィルムの表面には、無機物または有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。ここに、外部取り出し量子効率(%)=有機EL素子外部に発光した光子数/有機EL素子に流した電子数×100である。

10 また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光の λ m a x は 4 8 0 n m以下が好ましい。

〈有機EL素子の作製方法〉

15 本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極/陽極バッファー層/正孔 輸送層/電子阻止層 2/電子阻止層 1/発光層/正孔阻止層 1/正孔阻止層 2/ 電子輸送層/陰極バッファー層/陰極からなる有機EL素子の作製法について説 明する。

まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、1 μ 20 m以下、好ましくは10~200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に有機EL素子材料である陽極バッファー層、正孔輸送層、電子阻止層 2、電子阻止層 1、発光層、正孔阻止層 1、正孔阻止層 2、電子輸送層、陰極バッファー層の有機化合物薄膜を形成さ

せる。

5

10

15

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如く蒸着法、ウェットプロセス(スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法)等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度  $50\sim450$   $\mathbb C$ 、真空度  $10^{-6}\sim10^{-2}$  Pa、蒸着速度  $0.01\sim50$  nm/秒、基板温度  $-50\sim30$  0  $\mathbb C$ 、膜厚 0.1 nm $\infty5$   $\mu$  m、好ましくは  $5\sim20$  n mの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

これらの層を形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、 $1 \mu$  m以下好ましくは $50\sim200$  n mの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機E L 素子が得られる。この有機E L 素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

本発明の多色の表示装置は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、他層は共 通であるのでシャドーマスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャ スト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

20 発光層のみパターニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着 法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合においてはシャドーマ スクを用いたパターニングが好ましい。

また作製順序を逆にして作製することも可能である。このようにして得られた多

20

色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極性として電圧2~40V程度を印加すると、発光が観測できる。また交流電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

本発明の表示装置は、表示デバイス、ディスプレー、各種発光光源として用いる 5 ことができる。表示デバイス、ディスプレーにおいて、青、赤、緑発光の3種の有 機EL素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。

表示デバイス、ディスプレーとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリックス (パッシブマトリックス) 方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。

本発明の照明装置は、家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。

15 また、本発明に係る有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよい。

このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の 光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げら れるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより、上記用 途に使用してもよい。

#### 〈表示装置〉

本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような1種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像

20

を直接視認するタイプの表示装置(ディスプレイ)として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリクス(パッシブマトリクス)方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を3種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。または、一色の発光色、例えば白色発光をカラーフィルターを用いてBGRにし、フルカラー化することも可能である。さらに、有機ELの発光色を色変換フィルターを用いて他色に変換しフルカラー化することも可能であるが、その場合、有機EL発光のλmaxは480nm以下であることが好ましい。

10 本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を図面に基づいて以下に 説明する。

第1図は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。 有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。

15 ディスプレイ 1 は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部A の画像走査を行う制御部B等からなる。

制御部Bは、表示部Aと電気的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。

第2図は、表示部Aの模式図である。

表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。第2図においては、

画素3の発光した光が、白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。 配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走査線 5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している(詳細は図示せず)。

5 画素 3 は、走査線 5 から走査信号が印加されると、データ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

次に、画素の発光プロセスを説明する。

10 第3図は、画素の模式図である。

画素は、有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10として、赤色、緑色、青色発光の有機EL素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

- 15 第3図において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ1 1のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5を介 してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチ ングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコ ンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。
- 20 画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて 充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ 12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に 接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7

15

20

から有機EL素子10に電流が供給される。

制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10 10 に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジス タ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。 このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

ここで、有機EL素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

第4図は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。第4図において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。

順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子がなく、製造コストの低減が計れる。

#### 【実施例】

5 以下、実施例により本発明を説明するが、本発明の実施態様はこれらに限定されるものではない。

#### 実施例1

<有機EL素子1-1~1-10の作製>

- (1) 有機EL素子1-1の作製
- 10 陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにNPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにバソキュプロイン(BCP)を200mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにバソキュプロイン(BCP)を200mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlq₃を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。
- 20 次いで、真空槽を $4\times10^{-4}$  Paまで減圧した後、NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/secで透明支持基板に蒸着し45 nm正孔輸送層を設けた。

更にCBPとIr-1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着

速度 0.1 nm/sec、0.006 nm/secで正孔輸送層上に共蒸着して30 nmの発光層を設けた。

更に、BCPとIr-1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度  $0.2\,\mathrm{nm/s}\,\mathrm{e}\,\mathrm{c}\,$ 、 $0.000\,\mathrm{l}\,\mathrm{nm/s}\,\mathrm{e}\,\mathrm{c}\,$ で発光層上に共蒸着して  $0\,\mathrm{nm}$ の正孔阻止層  $1\,\mathrm{e}\,\mathrm{c}$  設けた。

更にAlq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記正孔阻止層1上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファー層としてフッ化リチウム 0.5 n mを蒸着し、更に、ア 10 ルミニウム 1 1 0 n mを蒸着して陰極を形成し、有機 E L 素子 1 - 1 を作製した。

### (2) 有機EL素子1-2の作製

有機EL素子1-1の作製において、正孔阻止層1にIr-1を用いずBCPのみを蒸着して形成した(蒸着速度:0.2nm/sec、厚さ:20nm)以外は、有機EL素子1-1と同じ方法で、有機EL素子1-2を作製した。

## 15 (3) 有機EL素子1-3の作製

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO (インジウムチンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間20 行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにNPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物

入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物  $3 \, \epsilon \, 2 \, 0 \, 0 \, m \, g$  入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートに $A \, 1 \, q \, s \, \epsilon \, 2 \, 0 \, 0 \, m \, g$  入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

次いで、真空槽を4×10<sup>-4</sup>Paまで減圧した後、NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/secで透明支持基板に蒸着し25 nm正孔輸送層を設けた。

更に化合物 1 と 1 r-1 2 の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.2 n m/s e c 0.0004 n m/s e c で正孔輸送層上に共蒸着して 2 0 n m 0 の電子阻止層 1 を設けた。

10 更に化合物 2 と I r - 1 2 の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ 蒸着速度 0. 1 n m / s e c、0.006 n m / s e c で電子阻止層 1 上に共蒸着 して 3 0 n m の発光層を設けた。

更に、化合物 3 と 1 r-1 2 の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0. 2 n m/s e c 、0. 0 0 0 1 n m/s e c で発光層上に共蒸着して 2 0 n m o e n m o e n m o e n m o e n m o e n m o e n m o e n m o e n m o e n m o e n m o e n o n o n o n o e n o n o

更にAlq®の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記正孔阻止層1上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファー層としてフッ化リチウム 0.5 nmを蒸着し、更に、ア 20 ルミニウム 110 nmを蒸着して陰極を形成し、有機 EL素子 1-3 を作製した。

### (4) 有機EL素子1-4の作製

陽極として $100 \text{mm} \times 100 \text{mm} \times 1.1 \text{mm}$ のガラス基板上にITO (インジウムチンオキシド)を100 nm製膜した基板 (NHテクノグラス社製NA45)

20

10 次いで、真空槽を $4\times10^{-4}$  Paまで減圧した後、NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/secで透明支持基板に蒸着し25 nm正孔輸送層を設けた。

更に化合物1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで正孔輸送層上に蒸着して10nm電子阻止層2を設けた

15 更に化合物1とIr-12の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ 蒸着速度0.2nm/sec、0.0004nm/secで発光層上に共蒸着して 10nmの電子阻止層1を設けた。

更に化合物 2 と 1 r-1 2 の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0 . 1 n m / s e c 、0 . 0 0 6 n m / s e c で電子阻止層 1 上に共蒸着して 3 0 n m o 発光層を設けた。

更に、化合物 3 と I r-1 2 の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0 . 2 n m / s e c 、0 . 0 0 0 1 n m / s e c で発光層上に共蒸着して 1 0 n m o m

更に、化合物3の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、正孔阻止層1上に10nmの正孔阻止層2を設けた。

更にAlq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記正孔阻止層2上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。

5 なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファー層としてフッ化リチウム0.5nmを蒸着し、更に、アルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-4を作製した。

(5) 有機EL素子1-5の作製

有機EL素子1-3の作製において、電子阻止層1にIr-12を用いず化合物 10 1のみを蒸着して形成(蒸着速度:0.2nm/sec、厚さ:20nm)し、正 孔阻止層1にIr-12を用いず化合物3のみを蒸着して形成した(蒸着速度:0.2nm/sec、厚さ:20nm)以外は、有機EL素子1-3と同じ方法で、有機EL素子1-5を作製した。

### (6) 有機EL素子1-6の作製

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにNPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr−12を100mg入れ、別のモリブ

デン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7をIr-7

次いで、真空槽を $4\times10^{-4}$  Paまで減圧した後、NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1\,\mathrm{nm/s}$  e c で透明支持基板に蒸着し $25\,\mathrm{nm}$  m正孔輸送層を設けた。

更に化合物1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで正孔輸送層上に蒸着して10nmの電子阻止層2を設けた

更に化合物1とIr-12の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ 10 蒸着速度0.1nm/sec、0.0006nm/secで発光層上に共蒸着して 10nmの電子阻止層1を設けた。

15 更に、化合物3とIr-7の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ 蒸着速度0.1nm/sec、0.0003nm/secで発光層上に共蒸着して 10nmの正孔阻止層1を設けた。

更に、化合物3の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、正孔阻止層1上に10nmの正孔阻止層2を設けた。

20 更にAlq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記正孔阻止層2上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファー層としてフッ化リチウム0.5nmを蒸着し、更に、ア

ルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-6を作製した。 (7) 有機EL素子1-7の作製

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA45)<br/>
5 にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにNPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlq。を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

次いで、真空槽を $4\times10^{-4}$  Paまで減圧した後、NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1\,\mathrm{n\,m/s}$  e c で透明支持基板に蒸着し $25\,\mathrm{n}$  m正孔輸送層を設けた。

更に化合物1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで正孔輸送層上に蒸着して20nm電子阻止層1を設けた

更に化合物2、Ir-1、Ir-12の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.1nm/sec、0.004nm/sec、0.003nm/secで電子阻止層1上に共蒸着して30nmの発光層を設けた。

更に、化合物3とIr-7の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ

蒸着速度 0.1 nm/sec、0.0003 nm/secで発光層上に共蒸着して10 nmの正孔阻止層 1を設けた。

更に、化合物3の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、正孔阻止層1上に10nmの正孔阻止層2を設けた。

5 更にAlq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記正孔阻止層2上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファー層としてフッ化リチウム 0.5 nmを蒸着し、更に、アルミニウム 110 nmを蒸着して陰極を形成し、有機 EL素子 1-7を作製した。

### 10 (8)有機EL素子1-8の作製

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにNPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに化合物2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を2を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-7を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlqsを200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

次いで、真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、NPDの入った前記加熱ボー

トに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/secで透明支持基板に蒸着 し25 nm正孔輸送層を設けた。

更に化合物1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで正孔輸送層上に蒸着して20nm電子阻止層1を設けた

更に化合物 2、I r-1、I r-7、I r-1 2の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.1 nm/sec、0.004 nm/sec、0.003 nm/sec、0.002 nm/secで電子阻止層 1上に共蒸着して30 nmの発光層を設けた。

更に、化合物3の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm 10 / secで発光層上に蒸着して10nmの正孔阻止層1を設けた。

更に、化合物3の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、正孔阻止層1上に10nmの正孔阻止層2を設けた。

更にAlq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/sec可能正孔阻止層2上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。

15 なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファー層としてフッ化リチウム 0.5 nmを蒸着し、更に、アルミニウム 110 nmを蒸着して陰極を形成し、有機 EL素子 1-8 を作製した。 蛍光 ドーパントをドープした例 (比較例)

(9) 有機EL素子1-9の作製

20 素子構成

ITO/NPD/CBP:ルプレン/BCP:ルプレン/Alq3/LiF/Al

作製方法は有機EL素子1-1と同じ。ドーパントが蛍光性ドーパントであるルプレンである。

## (10) 有機EL素子1-10の作製

#### 素子構成

ITO/NPD/CBP:ルプレン/BCP/Alq3/LiF/Al

1-9の正孔阻止層にルプレンをドープしない例

5 作製方法は有機EL素子1-2と同じ。発光層のドーパントが蛍光性ドーパント であるルプレンである。

作成方法は有機EL素子1-2と同じ。ドーパントが蛍光性ドーパントであるルプレンである。

作製した有機EL素子1-1~1-10について、発光色、正孔阻止層1、電子 10 阻止層1、発光層におけるリン光性化合物の含有率、各層のリン光性化合物の含有 率、リン光発光についての関係式のデータを表1に示す。

## 化合物1

## 化合物2

$$\begin{array}{c|c}
CH_3 & CH_3 \\
CH_3 & CH_3
\end{array}$$

## 化合物3

編		本発明	比較例	本発明	本発明	比較例	本発明	本発明	比較例	比較例	比較例
×2 ×2		0	0	0.3	0.3	0	11	0	0	0	0
- <del>-</del>		1.2	0	2.5	2.5	0	30	98	0	1.2	0
C/A×	100(%)	0	0	0.8333	0.8333	0	5	0	0	0	0
B/A×	100(%)	0.83333	0	3, 33333	3, 33333	0	10	4, 28571	0	0.83333	0
電子阻止層の リン光性または ケイ光性化合物	含有率 C (質量%)	0	0	0.05	0.05	0	0.3	0	0	0	0
正孔阻止層1の リン光性または ケイ光性化合物	含有率B (質量%)	0.05	0	0.2	0.2	0	0.6	0.3	0	0.05	0
発光層の リン光性または ケイ光性化合物		9	9	9	9	9	9	L	6	9	9
発光色		磷	綠	阜	丰	阜	Ħ	阜	白	兼	黄
有機配素子		1-1	1-2	1-3	1-4	1-5	1-6	1-7	1-8	1-9	1-10

※1:正孔阻止層1のリン光発光/発光層のリン光発光×100※2:電子阻止層1のリン光発光/発光層のリン光発光×100

〈有機EL素子1-1~1-10の評価〉

以下のようにして作製した有機EL素子 $1-1\sim1-10$ の発光寿命の評価を行い、その結果を表1に示す。

(発光寿命)

5 23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5 mA/c m²の一定電流で駆動したときに、輝度が発光開始直後の輝度(初期輝度)の半分に低下するのに要した時間を測定し、これを半減寿命時間(τ0.5)として寿命の指標とした。なお測定には分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)を用いた。

(外部取り出し量子効率)

10 作製した有機EL素子について、23°C、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5mA/cm²定電流を印加したときの外部取り出し量子効率(%)を測定した。なお測定には同様に分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)を用いた。

表2の発光寿命の測定結果は、有機EL素子1-1、1-2については有機EL素子1-2の測定値を100とした時の相対値で表し、有機EL素子1-3~1-15 5については有機EL素子1-5の測定値を100としたときの相対値で表し、有機EL素子1-6~1-8については、有機EL素子1-8の測定値を100としたときの相対値で表し、有機EL素子1-9、1-10については有機EL素子1-10の測定値を100とした時の相対値で表した。

表 2

		32.2	
有機 旺 素子	発光寿命 (相対値%)	備考	外部取り出し量子効率 (相対値%)
1-1	1100	本発明	110
1-2	100	比較例	100
1-3	1500	本発明	117
1-4	2000	本発明	120
1-5	100	比較例	100
1-6	1000	本発明	115
1-7	900	本発明	110
1-8	100	比較例	100
1-9	105	比較例	102
1-10	100	比較例	100

表2から、本発明の有機EL素子は、長寿命であることが分かった。 実施例2

〈フルカラー表示装置の作製〉

5 (青色発光有機EL素子)

実施例1で作製した有機EL素子1-4を用いた。

(緑色発光有機EL素子)

実施例1で作製した有機EL素子1-1を用いた。

(赤色発光有機EL素子)

10 実施例1で作製した有機EL素子1-4において、I-12の替えてIr-9を 用いた以外は、有機EL素子1-4と同様の方法で作製した有機EL素子1-4R を用いた。

上記の赤色、緑色及び青色発光有機EL素子を、同一基板上に並置し、第1図に 記載の形態を有するアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製し、第2 図には、作製した前記表示装置の表示部Aの模式図のみを示した。即ち、同一基板 上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、並置した複数の画素3(発 光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等)とを有し、配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している(詳細は図示せず)。前記複数の画素3は、それぞれの発光色に対応した有機EL素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。この様に各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示装置を作製した。

10 該フルカラー表示装置を駆動することにより、長寿命であるフルカラー動画表示 が得られることを確認することができた。

#### 実施例3

5

有機EL素子1-6の非発光面をガラスケースで覆い、照明装置とした。照明装置は、発光輝度、発光効率の高く、長寿命である白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。第5図は照明装置の概略図で、第6図は照明装置の断面図である。

#### 産業上の利用可能性

本発明により、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置およ 20 び表示装置を提供することができた。

#### 請求の範囲

- 1. 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する 有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、 前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記正孔阻止層1がリン光性化合物を 含有し、該リン光性化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の0. 1~50%であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 2. 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接して 10 正孔阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクト ロルミネッセンス素子。
  - 3. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有されるリン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 4. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

15

5

5. 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する 有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陽極との間にあり、 前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記電子阻止層1がリン光性化合物を 含有し、該リン光性化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の 0.1~50%であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

- 6. 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接して 電子阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第5項に記載の有機エレクト ロルミネッセンス素子。
- 7. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有されるリン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする請求の範囲第5項に記載 10 の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 8. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする請求の範囲第5項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15

9. 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記発光層と前記陽極との間にあり、前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記正孔阻止層1がリン光性化合物を含有し、該リン光性化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%であり、前記電子阻止層1がリン光性化合物を含有し、該リン光性化合物の含有率が前記発光層のリン光性化合物の含有率の0.1~50%であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

- 10. 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接して 正孔阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第9項に記載の有機エレクト ロルミネッセンス素子。
- 5 11. 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接して電子阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 12. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有され 3リン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする請求の範囲第9項に記載 の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 13. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記正孔阻止層1に含有されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする請求の範囲第9項に 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 14. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有されるリン光性化合物が同一化合物であることを特徴とする請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 15. 前記発光層に含有されるリン光性化合物と、前記電子阻止層1に含有されるリン光性化合物とが、異なる化合物であることを特徴とする請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- 16. 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記正孔阻止層1が前記発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するように、前記正孔阻止層1にリン光性化合物を含有させたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 17. 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接して正孔阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第16項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

15

5

- 18. 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する 有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陽極との間にあり、 前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記電子阻止層1が前記発光層のリン 光発光の0.1~50%のリン光発光を有するように、前記電子阻止層1にリン光 性化合物を含有させたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 19. 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接して電子阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第18項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

20. 陰極と陽極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する 有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、 前記発光層に隣接して正孔阻止層1を有し、前記発光層と前記陽極との間にあり、 前記発光層に隣接して電子阻止層1を有し、前記正孔阻止層1が前記発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するように、前記正孔阻止層1にリン光性化合物を含有させ、前記電子阻止層1が前記発光層のリン光発光の0.1~50%のリン光発光を有するように、前記電子阻止層1にリン光性化合物を含有させたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

21. 前記正孔阻止層1と前記陰極との間にあり、前記正孔阻止層1に隣接して正孔阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第20項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

5

- 22. 前記電子阻止層1と前記陽極との間にあり、前記電子阻止層1に隣接して電子阻止層2を有することを特徴とする請求の範囲第20項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 15 23. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクト ロルミネッセンス素子。
  - 24. 請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

20

25. 請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

- 26. 請求の範囲第25項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備えたことを特徴とする表示装置。
- 27. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第5項に記載の有機エレクト 5 ロルミネッセンス素子。
  - 28. 請求の範囲第5項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
- 10 29. 請求の範囲第5項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。
  - 30. 請求の範囲第29項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備えたことを特徴とする表示装置。

- 31. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 32. 請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたこ 20 とを特徴とする表示装置。
  - 33... 請求の範囲第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

- 34. 請求の範囲第33項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備えたことを特徴とする表示装置。
- 5 35. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第16項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 36. 請求の範囲第16項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

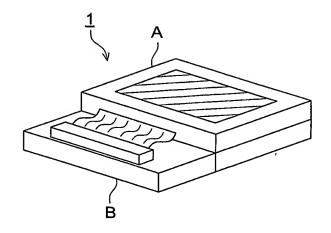
- 37. 請求の範囲第16項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。
- 38. 請求の範囲第37項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備 15 えたことを特徴とする表示装置。
  - 39. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第18項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 20 40. 請求の範囲第18項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
  - 41. 請求の範囲第18項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた

ことを特徴とする照明装置。

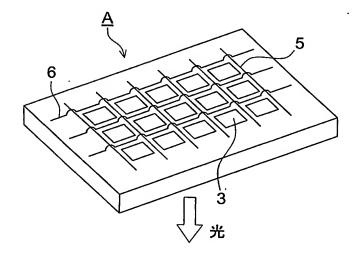
42. 請求の範囲第41項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備えたことを特徴とする表示装置。

- 43. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第20項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 44. 請求の範囲第20項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた 10 ことを特徴とする表示装置。
  - 45. 請求の範囲第20項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。
- 15 46. 請求の範囲第45項に記載の照明装置と、表示手段として液晶素子とを備 えたことを特徴とする表示装置。

# 第1図



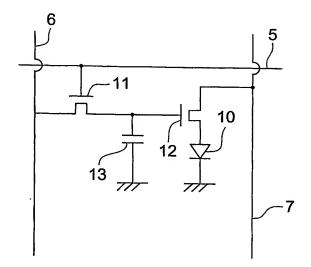
# 第2図



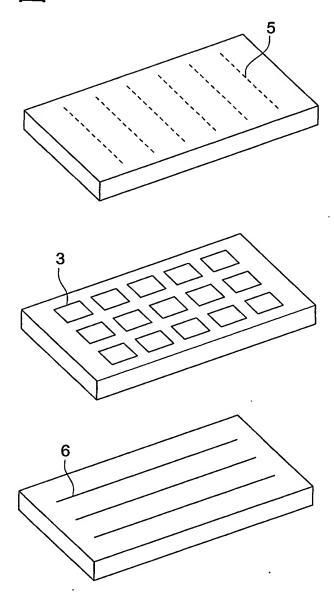
WO 2005/009088 PCT/JP2004/010082

2/4

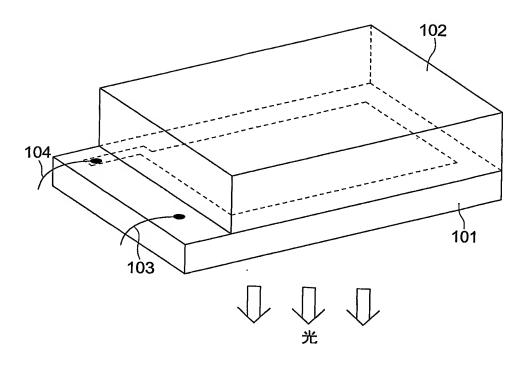
第3図



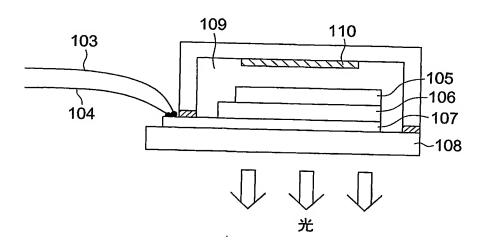
第4図



第5図



第6図



### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

	OT A COTTO		PC	CT/JP2004/010082	
A.	CLASSIFIC Int.Cl <sup>7</sup>	ATION OF SUBJECT MATTER H05B33/22			
Acc	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
	FIELDS SE.				
Mir	imum docum	entation searched (classification system followed by cla	ssification symbols)		
	Int.Cl'	но5в33/00-28			
Doc	cumentation s	earched other than minimum documentation to the exte	at that such documents are in al	-1-41-31-C-11	
	Orcauso	1926-1996 (lo	roku Jitsuyo Shinan	Koho 1994–2004	
	Kokai Ji		tsuyo Shinan Toroku	Koho 1996–2004	
Ele	ctronic data h				
] [	cuonic data o	ase consulted during the international search (name of o	lata base and, where practicable	e, search terms used)	
ļ					
<u> </u>					
C.	DOCUMEN	TS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
_ C	Category*	Citation of document, with indication, where ap	=	ges Relevant to claim No.	
1	Х	JP 2000-315583 A (NEC Corp.)	,	1-3,5-7,	
]		14 November, 2000 (14.11.00),		9-12,14,	
i		All Claims; Par. Nos. [0024], & US 6541909 A	[0033]	24-26,28-30,	
		& 05 6541909 A		32-34	
	x	JP 2001-155860 A (Denso Corp	<b>\</b>	4 0 10 15	
		08 June, 2001 (08.06.01),	• / /	4,8,13,15,	
1		Front page; Par. No. [0060]		23,27,31	
		& US 6528188 A			
}					
	Х	JP 10-83888 A (Motorola, Inc	.),	1-3,5-7,	
		31 March, 1998 (31.03.98),		9-12,14,	
l	i	All Claims; Par. Nos. [0014],	[0018]	24-26,28-30,	
l		& US 5773929 A ,		32-34	
i					
<u> </u>					
Ľ	,	cuments are listed in the continuation of Box C.	See patent family anne	x.	
" <sub>A"</sub>		gories of cited documents: efining the general state of the art which is not considered	"T" later document published a	fter the international filing date or priority	
	to be of part	icular relevance	the principle or theory und	the application but cited to understand erlying the invention	
"E"	earlier applie	cation or patent but published on or after the international	"X" document of particular rele	evance: the claimed invention cannot be	
"L"	filing date document w	hich may throw doubts on priority claim(s) or which is	considered novel or cann step when the document is	Ot be considered to involve an inventive	
-	cited to esta	IDIISH the bublication date of another citation or other		evance; the claimed invention cannot be	
"o"		on (as specified)	considered to involve an	inventive step when the document is	
"P"		ferring to an oral disclosure, use, exhibition or other means ublished prior to the international filing date but later than	being obvious to a person	e other such documents, such combination	
	the priority	late claimed	"&" document member of the s		
<u> </u>				•	
Dat	e of the actua	completion of the international search	Date of mailing of the interna	ational search report	
ļ	OO NOVE	ember, 2004 (08.11.04)	07 December,	2004 (07.12.04)	
Nar	ne and mailin	g address of the ISA/	Authorized officer		
	Japanes	se Patent Office			
Fac	simile No.		Talanhama Nic		
Form	PCT/ISA/21	0 (second sheet) (January 2004)	Telephone No.		
		•			

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

Category*	Citation of document with indication	
X	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant pas JP 03-114197 A (NEC Corp.),	
••	15 May, 1991 (15.05.91), Fig. 3; page 2, upper right column, line 18 lower left column, line 10 (Family: none)	1-3,5-7, 9-12,14, to 24-26,28-30, 32-34
x	JP 06-158038 A (Pioneer Electronic Corp.), 07 June, 1994 (07.06.94), Claim 1; Par. Nos. [0009], [0031]; example 3 page 2, upper right column, line 18 to lower left column, line 10 (Family: none)	1-3,5-7, 9-12,14, 24-26,28-30, 32-34
A	JP 10-231479 A (Oki Electric Industry Co., Ltd.), 02 September, 1998 (02.09.98), Par. Nos. [0018] to [0021] (Family: none)	1-15,23-34
A	JP 2002-324680 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd.), 08 November, 2002 (08.11.02), Full text; all drawings (Family: none)	1-15,23-34
E,X	JP 2004-226673 A (Toyota Industries Corp.), 12 August, 2004 (12.08.04), Claim 1; Par. Nos. [0005], [0057], [0063], [0082] to [0083] (Family: none)	1-6,8-11,13, 15,23-24
•		

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP2004/010082

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)
This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:  1. Claims Nos.:  because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. X Claims Nos.: 16-22, 35-46  because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:  Since claims 16-22, 35-46 try to define the invention by the result it brings and the emission ratio between the hole blocking layer and the light-emitting layer is not clearly specified in the description, they fail to satisfy the requirement of clarity prescribed under PCT Article 6.  3. Claims Nos.:  because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).
Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)  This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
<ol> <li>As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.</li> <li>As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.</li> <li>As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:</li> </ol>
4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
Remark on Protest  The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl7 H05B33/22

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H05B33/00-28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2004年

日本国登録実用新案公報

1994-2004年

日本国実用新案登録公報

1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連する	3と認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する調求の範囲の番号
X .	JP 2000-315583 A (日本電気株式会社) 2000.11.14,全請求項、段落【0024】【0033】 & US 6541909 A	1-3, 5-7, 9-12, 14, 24-26, 28-30, 32-34
X .	JP 2001-155860 A (株式会社デンソー) 2001.06.08,公報フロント頁、及び段落【0060】 & US 6528188 A	4, 8, 13, 15, 23, 27, 31

#### X C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- \* 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 08.11.2004 国際調査報告の発送日 07.12.2004 国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C(続き)	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X .	JP 10-83888 A (モトローラ・インコーポレイテッド) 1998.03.31,全請求項、段落【0014】【0018】& US 5773929 A	1-3, 5-7, 9-12, 14, 24-26, 28-30, 32-34
X	JP 03-114197 A (日本電気株式会社) 1991.05.15,第3図、公報第2頁右上欄第18行〜左下 欄第10行 (ファミリなし)	1-3, 5-7, 9-12, 14, 24-26, 28-30, 32-34
X	JP 06-158038 A (パイオニア株式会社) 1994.06.07,請求項1、段落【0009】【0031】 及び実施例第3図、公報第2頁右上欄第18行~左下欄第10行 (ファミリなし)	1-3, 5-7, 9-12, 14, 24-26, 28-30, 32-34
A	JP 10−231479 A (沖電気工業株式会社) 1998.09.02,段落【0018】~【0021】 (ファミリなし)	1-15, 23-34
A	JP 2002-324680 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2002.11.08,全文全図 (ファミリなし)	1-15, 23-34
E, X	JP 2004-226673 A (株式会社豊田自動織機) 2004.08.12,請求項1、段落【0005】【0057】 【0063】【0082】~【0083】 (ファミリなし)	1-6, 8-11, 13, 15, 23-24

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)	
伝第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部につ	ハて作
成しなかった。	
1. □ 請求の範囲 は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものであっまり、	っる。
	l
2. X 請求の範囲 16-22,35-46 は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしない国際出願の部分に係るものである。つまり、	てい
請求の範囲16~22.35~46は、もたらされる結果により発明を特定しょる	レォー
つ ひりくのり、且つに付明に関及い発光周からの基光の割合については明細筆に明ね	産に
定義されていないから、PCT第6条の意味における明確性の要件を欠いている。	
	I
3. □ 請求の範囲は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規	記定に
従って記載されていない。	.,
	[
第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)	
次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。	
1011年 10年7月11日 10年9月11日 10日 10日 10日 10日 10日 10日 10日 10日 10日	Į
	ĺ
	ŀ
·	ł
	1
1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能の範囲について作成した。	な請求
2. □ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の節囲について調査することができたの	
2. [_] 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたの 加調査手数料の納付を求めなかった。	で、追
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数	iki o sh
付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。	科の約!
•	
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初	4± c = - 1
されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。	に呼びれて
追加調査手数料の異議の申立てに関する注意	
□ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。 ・	
□ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。	